Abstract of **DE 200 02 118 U1**

Electro-chemical cell

Electro-chemical cell by first, a first electrode (1) exhibiting catalyst area, marked by second, a second electrode (2) exhibiting catalyst area and by a polymer electrolyte diaphragm (3), arranged between the Katalysatorraumen, by the fact that the first electrode exhibits (1) platinum and ruthenium and that platinum and iridium exhibit the second electrode (2).

- BUNDESREPUBLIK @ Gebrauchsmusterschrift **DEUTSCHLAND**
 - ⁽¹⁰⁾ DE 200 02 118 U 1

(§) Int. Cl.⁷: H 01 M 4/92 C 25 B 11/08



DEUTSCHES PATENT- UND MARKENAMT (1) Aktenzeichen:

200 02 118.4

2 Anmeldetag:

7. 2.2000

(1) Eintragungstag:

7. 6. 2001

Bekanntmachung im Patentblatt:

12. 7.2001

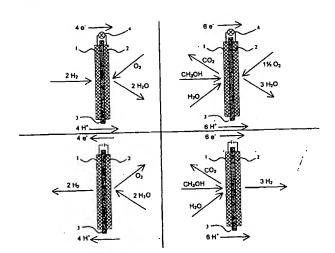
(13) Inhaber:

Höller, Stefan Dipl.-Ing.(FH), 23628 Krummesse, DE; Küter, Uwe, 23558 Lübeck, DE

(14) Vertreter:

T. Wilcken und Kollegen, 23554 Lübeck

- (§4) Elektrochemische Zelle
- Elektrochemische Zelle mit einem ersten, eine erste Elektrode (1) aufweisenden Katalysatorraum, mit einem zweiten, eine zweite Elektrode (2) aufweisenden Katalysatorraum und mit einer zwischen den Katalysatorräumen angeordneten Polymerelektrolytmembran (3), dadurch gekennzeichnet, dass die erste Elektrode (1) Platin und Ruthenium aufweist und dass die zweite Elektrode (2) Platin und Iridium aufweist.





Anmelder:

Stefan Höller

Uwe Küter

5

10

15

Elektrochemische Zelle

Die Erfindung betrifft eine elektrochemische Zelle gemäß den im Oberbegriff des Anspruches 1 bzw. Anspruches 2 angegebenen Merkmalen. Derartige Zellen werden als Brennstoffzelle zur Erzeugung elektrischer Energie sowie auch in umgekehrter Richtung als Elektrolyseur eingesetzt. Die vorliegende Erfindung befasst sich mit solchen Zellen, die zwei Katalysatorräume mit jeweils darin angeordneten Elektroden aufweisen, zwischen denen eine Polymerelektrolytmembran angeordnet ist, d. h. eine Membran, die ionendurchlässig ist. Der grundsätzliche Aufbau derartiger Zellen ist hinlänglich bekannt, es wird in diesem Zusammenhang insbesondere auf DE 40 27 655 C1, DE 195 44 323 A1 und DE 198 15 455 A1 verwiesen.

Sowohl DE 40 27 655 C1 als auch DE 198 15 455 A1 beschreiben Brennstoffzellen, die auch im Umkehrprozess, also als Elektrolyseur arbeiten und damit nicht nur zur Umwandlung chemischer Energie in elektrische Energie, sondern auch umgekehrt, d. h. in Verbindung mit Gasspeichern auch als Energiespeicher eingesetzt werden können. Allen Systemen gemeinsam ist jedoch, dass sie ausschließlich zur elektrochemischen Oxidation von Wasserstoff mit Sauerstoff, sei es als reines Gas oder als Luftsauerstoff, ausgelegt sind. Eine weitere wesentliche Anwendung einer elektrochemischen Zelle ist jedoch die elektrochemische Oxidation von Methanol.

Vor diesem Hintergrund liegt der vorliegenden Erfindung die Aufgabe zugrunde, eine elektrochemische Zelle der eingangs genannten Art, insbesondere







für den Lehrbetrieb, so auszugestalten, dass sie vielseitig einsetzbar und besonders einfach in der Anwendung ist.

Diese Aufgabe wird gemäß der Erfindung durch die in Anspruch 1 bzw. Anspruch 2 angegebenen Merkmale gelöst. Vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung sind in den Unteransprüchen 3 bis 5 sowie der nachfolgenden Beschreibung angegeben.

Gemäß der Erfindung nach Anspruch 1 sind die beiden Elektroden so ausgelegt, dass eine der Elektroden Platin und Ruthenium und die zweite Elektrode Platin und Iridium aufweisen. Eine so bestückte Zelle kann als Brennstoffzelle sowohl zur elektrochemischen Oxidation von Wasserstoff als auch von Methanol eingesetzt werden sowie in den entsprechenden Umkehrprozessen, wobei ein besonderer Vorteil darin besteht, dass im Umkehrprozess, also im Einsatz als Elektrolyseur keine Beschickungsumkehr erforderlich ist, d. h. auf der Seite, auf der vorher im Brennstoffzellenbetrieb Wasserstoff zugeführt worden ist, im Elektrolysebetrieb Wasserstoff entsteht. Dies ist besonders vorteilhaft, da der Betrieb der Zelle im bifunktionellen Einsatz wesentlich erleichtert wird. Es können die sonst üblichen Spülungen mit Inertgas entfallen, auch ist der leitungsmäßige Anschluss der Zelle wesentlich vereinfacht. Dabei kann die Zelle wahlweise zur elektrochemischen Oxidation von Wasserstoff oder Methanol sowie die entsprechenden Umkehrprozesse eingesetzt werden.

Weiterhin kann die erfindungsgemäße Zelle auch als Pumpe sowohl für Wasserstoff als auch für Sauerstoff eingesetzt werden, um das Gas von einer Seite der Membran zu der anderen und zu einem höheren Druckniveau unter Einsatz elektrischer Energie zu fördern bzw. unterschiedliche Druckniveaus unter Erzeugung elektrischer Energie auszugleichen. Dabei werden durch Anlegen einer Spannung an die Elektroden Elektronen von einer zur anderen Seite der Membran über die elektrische Leitungsverbindung befördert. Hierdurch entsteht ein Ionenüberschuss auf einer Seite der Membran, wodurch diese durch die







Membran hindurchwandern, um auf der anderen Seite der Membran mit den dort freien Elektronen wieder ins Gleichgewicht zu kommen. Auf diese Weise kann der Wasserstoff von der einen Seite der Membran zur anderen Seite der Membran gepumpt werden, d. h. auch komprimiert werden. In analoger Weise kann dies auch mit Sauerstoff erfolgen, wobei dort in einem Zwischenschritt zunächst Wasser entsteht, das durch die Membran diffundiert.

5

10

15

20

25

30

Alternativ kann eine solche elektrochemische Zelle auch dadurch gebildet sein, dass eine der Elektroden Platin und die andere Elektrode Platin und Ruthenium und Iridium aufweist.

Die Elektroden können in an sich bekannter Weise ausgebildet sein, beispielsweise in Form eines Kohlenstoffträgers, auf den dann eine katalytisch aktive Schicht aufgebracht wird, wie dies beispielsweise in DE 195 44 323 A1 beschrieben ist, auf die in diesem Zusammenhang ausdrücklich verwiesen wird. Dabei können die Metalle einzeln oder auch in Form von einer oder mehrerer Legierungen aufgebracht werden. Das Aufbringen in Form einer Legierung wird in der Regel günstiger sein, insbesondere garantiert dies eine sehr gleichmäßige und flächenmäßige Verteilung der Metalle. Als besonders vorteilhaft hat es sich dabei erwiesen, die Metalle Platin und Ruthenium in Form einer Legierung aufzubringen.

Anwendungstechnisch besonders vorteilhaft ist es, wenn beide Elektroden jeweils mit Platin, Iridium und Ruthenium bestückt sind, da dann die Zelle praktisch beliebig betreibbar ist. Eine Verpolung ist ausgeschlossen, was insbesondere im Lehrbetrieb von Vorteil ist, wenn Experimente auch von nicht fachkundigen Anwendern durchgeführt werden sollen.

Die Erfindung ist nachfolgend anhand zweier in den Zeichnungen dargestellten Ausführungsbeispielen näher erläutert. Es zeigen







Fig. 1a - h in schematisierter Darstellung die sich bei der jeweiligen Betriebsart ergebenden Reaktionen bei einem ersten Ausführungsbeispiel und

Fig. 2a - h in Darstellung nach Fig. 1 die sich ergebenden Reaktionen bei einem zweiten Ausführungsbeispiel.

10

15

20

25

30

Die Figuren stellen nur schematisch die Elektroden sowie die Protonenaustauschmembran dar. Es versteht sich, dass eine elektrochemische Zelle gemäß der Erfindung in üblicher Weise aufgebaut ist, d. h. dass die Elektroden in entsprechend abgeschlossenen Katalysatorräumen angeordnet sind, die über Leitungsverbindungen an Fluidspeicher, die Umgebung oder dergleichen angeschlossen sind. Da der Aufbau solcher Zellen an sich bekannt ist, wird darauf verzichtet, diesen hier im Einzelnen zu beschreiben. Es wird in diesem Zusammenhang insbesondere auch auf die eingangs erwähnten Druckschriften verwiesen, welche weitere Einzelheiten zu einem möglichen Zellenaufbau beinhalten.

Die anhand der Figuren 1a bis h dargestellte Zelle (erstes Ausführungsbeispiel) weist eine erste Elektrode 1, eine zweite Elektrode 2 sowie eine dazwischen angeordnete protonendurchlässige Membran 3 auf. Die erste Elektrode ist mit Platin und Ruthenium an ihrer wirksamen Oberfläche versehen. In diesem Fall ist eine Platin-Rutheniumlegierung aufgebracht. Die zweite Elektrode weist an ihrer Oberfläche Platin und Iridium auf, die als Einzelmetalle aufgebracht sind. Bei der protonendurchlässigen Membran 3 handelt es sich um eine übliche Polymerelektrolytmembran, wie sie für die Verwendung von Brennstoffzellen an sich bekannt ist. Die als Katalysator wirkenden Metalle Platin und Ruthenium bzw. Platin und Iridium sind auf einem elektrisch leitfähigen und porösen Kohlenstoffträger aufgebracht, und zwar mittels eines ionenleitenden Polymers, das in flüssiger Form aufgetragen wird und die vorerwähnten Metalle in ungelöster Form als Suspension beinhaltet. Diese Suspension wird auf die Kohlen-







stoffträger aufgebracht, die zuvor mit einer Suspension aus PTFE (Polytetrafluorethylen) behandelt worden sind, um die Elektroden wasserabstoßend auszugestalten.

Bei der Darstellung nach Fig. 1a wird die Zelle als Brennstoffzelle betrieben. An der ersten Elektrode 1 steht Wasserstoff an, an der zweiten Elektrode 2 Sauerstoff, entweder in reiner Form oder auch in Form von in der Luft befindlichem Sauerstoff. Die Elektrode 1 bildet also die Anode, während die Elektrode 2 die Kathode bildet. Wasserstoffmoleküle werden an der Anode in Wasserstoffionen und -elektronen zerlegt, die Protonen gelangen durch die protonendurchlässige Membran 3 zur Kathode, die Elektronen durch den elektrischen Verbraucher 4 von der Anode zur Kathode, wobei sich die Hydroxidionen mit den Wasserstoffionen zu Wasser vereinigen. In dieser Betriebsart ist bei beiden Elektroden lediglich Platin als Katalysator aktiv.

15.

20

Bei der Darstellung nach Fig. 1b wird die erste Elektrode 1 mit einem Methanolwassergemisch beaufschlagt, während der zweiten Elektrode 2 Sauerstoff bzw.
Luft zugeführt wird. Auch hierbei entsteht eine elektrische Spannung zwischen
den Elektroden, die durch Anschließen eines Verbrauchers genutzt werden kann.
Als Reaktionsprodukte entstehen Kohlendioxid auf Seite der ersten Elektrode
und Wasser auf Seite der zweiten Elektrode. Bei dieser Konstellation ist von der
ersten Elektrode Platin und Ruthenium und von der zweiten Elektrode Platin
aktiv als Katalysator am Prozess beteiligt.

Fig. 1c zeigt den Umkehrprozess von 1a, wobei die zweite Elektrode mit Wasser beaufschlagt und im Übrigen eine Gleichspannung an die Elektroden 1, 2 angelegt wird. An der ersten Elektrode entsteht Wasserstoff, während an der zweiten Elektrode Sauerstoff frei wird. Bei diesem Prozess sind in der ersten Elektrode Platin und in der zweiten Elektrode Iridium als Katalysator aktiv.







In Fig. 1d ist der Umkehrprozess zu Fig. 1b dargestellt. Dabei handelt es sich genau betrachtet jedoch nicht um einen echten Umkehrprozess, sondern um einen alternativen elektrolytischen Prozess. Der ersten Elektrode 1 wird nämlich wiederum Methanol und Wasser zugeführt. Es wird eine Gleichspannung an die Elektroden angelegt, wobei an der ersten Elektrode Kohlendioxid und an der zweiten Elektrode reiner Wasserstoff frei wird. Aktiv und katalytisch am Prozess beteiligt ist bei der ersten Elektrode Platin und Ruthenium, bei der zweiten Elektrode Platin.

In Fig. 1e ist die Verwendung der Zelle als Wasserstoffpumpe bzw. als Kompressor dargestellt. Eine solche Anordnung kann beispielsweise zur Druckerhöhung oder auch zur Reinigung eingesetzt werden, wenn z. B. Kohlendioxid aus einem Gasgemisch entfernt werden soll. Durch Anlegen einer Gleichspannung an die beiden Elektroden 1, 2 gelangt Wasserstoff von einer auf die andere Seite der Membran, wonach aufgrund des durch die elektrische Energie erzeugten Elektronenflusses die auf der einen Seite dann im Überschuss stehenden Wasserstoffionen durch die Membran auf die andere Seite wandern. In dieser Funktion ist jeweils nur das Platin der Elektroden aktiv am Prozess beteiligt.

Fig. 1f zeigt eine ähnliche Anordnung zum Pumpen bzw. Komprimieren von Sauerstoff. Bei dieser Anordnung entsteht in einem Zwischenschritt Wasser, das jedoch durch die Membran 3 diffundiert, wie in der Fig. angedeutet. Bei dieser Anordnung ist seitens der ersten Elektrode 1 Platin und seitens der zweiten Elektrode 2 Iridium aktiv. Die anhand der Figuren 1e und f dargestellten Prozesse können, wie die Figuren 1g und h zeigen, auch zum Abbau eines Druckgefälles unter Abgabe elektrischer Energie dienen, wobei dann die gleichen Metalle katalytisch aktiv sind, d. h. bei der Anordnung gemäß Fig. 1g ist bei beiden Elektroden 1, 2 Platin aktiv am Prozess beteiligt, wohingegen bei der Anordnung nach Fig. 1h bei der ersten Elektrode 1 Platin und bei der zweiten Elektrode 2 Iridium katalytisch wirksam sind. Die Expansion von Wasserstoff bzw. Sauerstoff auf ein niedrigeres Druckniveau nD erzeugt dabei elektrische Ener-







gie, wie durch den in den Figuren mit 4 dargestellten Verbraucher verdeutlicht wird. In den Figuren ist die Seite des höheren Druckniveaus mit hD und die des niedrigeren Druckniveaus mit nD gekennzeichnet.

5 Um die vorbeschriebene Brennstoffzelle verpolungssicher auszugestalten, können entweder beide Elektroden 1 und 2 gleich ausgebildet sein, sie müssen dann jedoch Platin, Iridium und Ruthenium aufweisen, oder aber es ist eine elektronische Sicherung beispielsweise in Form einer parallelgeschalteten Diode vorzusehen, welche bei korrekter Polung sperrt und bei falscher Polung den
10 Strom passieren lässt.

15

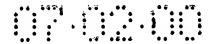
20

25

Bei der anhand der Figuren 2a bis h beschriebenen Zellenanordnung ist die erste Elektrode 1 mit Platin und die zweite Elektrode 2 mit Platin, Iridium und Ruthenium versehen. Auch hier besteht die Elektrode aus einem Träger, beispielsweise aus Kohlenstoff, auf den die Metalle aufgebracht sind. Die Darstellung nach den Fig. 2a bis h entsprechen in ihren Betriebszuständen denen der Figuren 1a bis h in entsprechender Reihenfolge. Soweit es die Prozesse gemäß den Darstellungen der Figuren 2a, 2c, 2e, 2f, 2g und 2h angeht, entsprechen diese denen der anhand der entsprechenden Figuren 1a, 1c, 1e, 1f, 1g und 1h vorbeschriebenen. Es sind auch die gleichen Metalle katalytisch aktiv. Soweit es jedoch die Figuren 2b und 2d angeht, laufen die Reaktionen dort im Vergleich zu den anhand der Figuren 1b und 1d vorbeschriebenen in umgekehrter Richtung ab, wobei entsprechend der Richtungsumkehr bei den jeweiligen Elektroden wiederum dieselben Metalle katalytisch aktiv sind. So sind beispielsweise bei der Reaktion gemäß Fig. 2b von der ersten Elektrode 1 Platin und von der zweiten Elektrode 2 Platin und Ruthenium aktiv am Prozess beteiligt.







ANSPRÜCHE

5

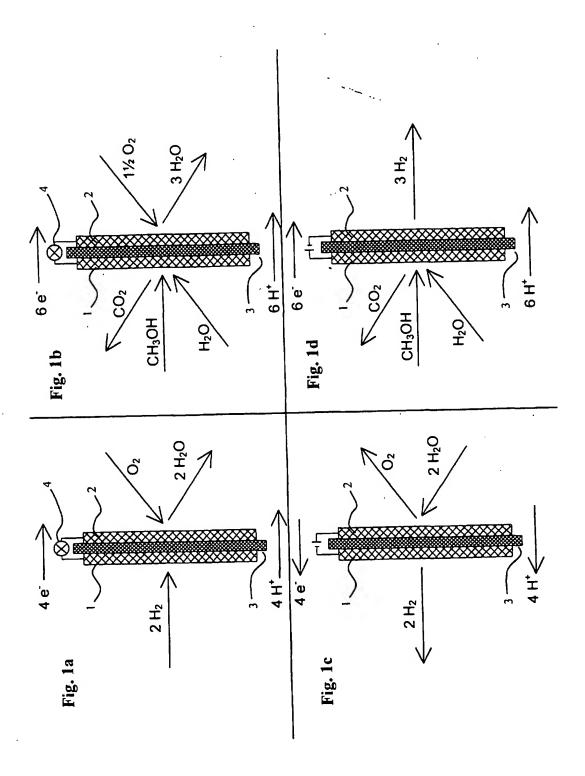
10

- 1. Elektrochemische Zelle mit einem ersten, eine erste Elektrode (1) aufweisenden Katalysatorraum, mit einem zweiten, eine zweite Elektrode (2) aufweisenden Katalysatorraum und mit einer zwischen den Katalysatorräumen angeordneten Polymerelektrolytmembran (3), dadurch gekennzeichnet, dass die erste Elektrode (1) Platin und Ruthenium aufweist und dass die zweite Elektrode (2) Platin und Iridium aufweist.
- 2. Elektrochemische Zelle mit einem ersten, eine erste Elektrode (1) auf15 weisenden Katalysatorraum, mit einem zweiten, eine zweite Elektrode (2)
 aufweisenden Katalysatorraum und mit einer zwischen den Katalysatorräumen
 angeordneten Polymerelektrolytmembran (3), wobei die erste Elektrode (1)
 Platin aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass die zweite Elektrode (2) Platin
 und Ruthenium und Iridium aufweist.

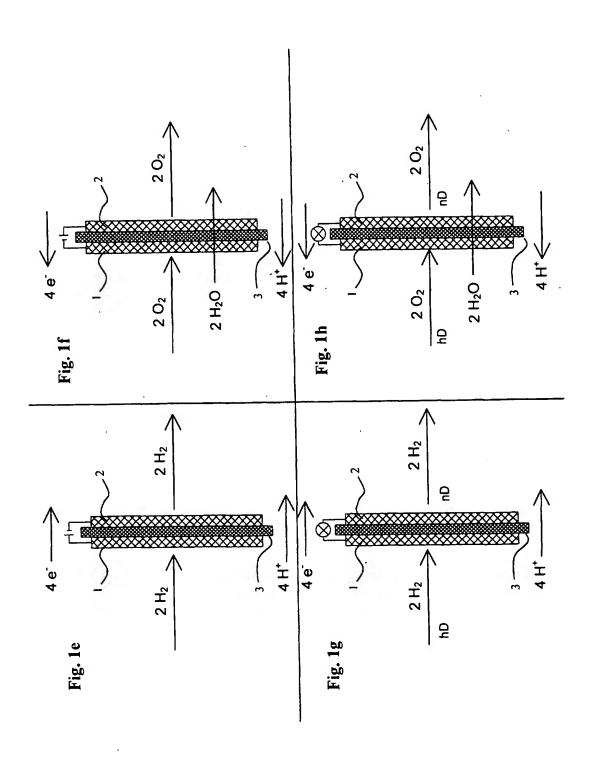
- 3. Zelle nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass jede der Elektroden (1, 2) Platin und Iridium und Ruthenium aufweist.
- 4. Zelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass Metalle einer Elektrode (1, 2) als Legierung aufgebracht sind.
 - 5. Zelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass Platin und Ruthenium als Legierung aufgebracht sind.

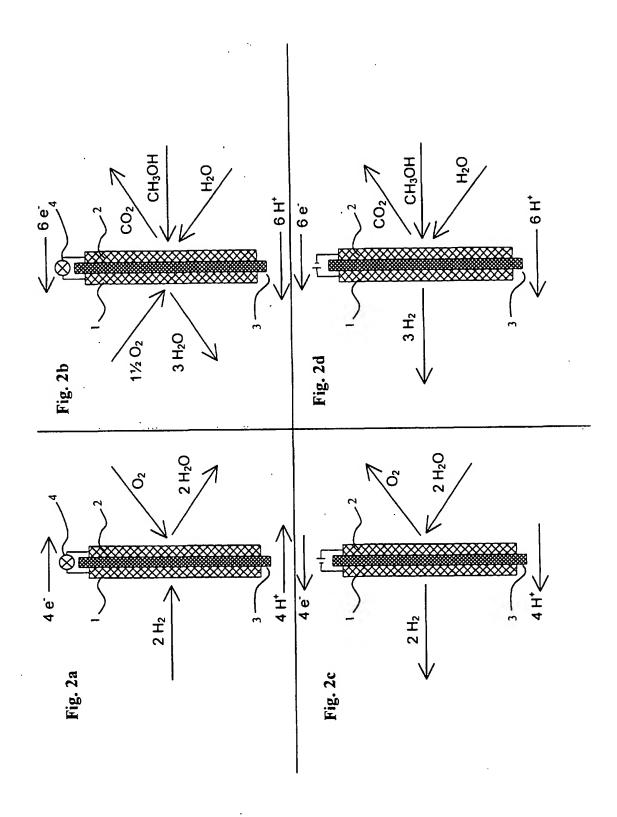




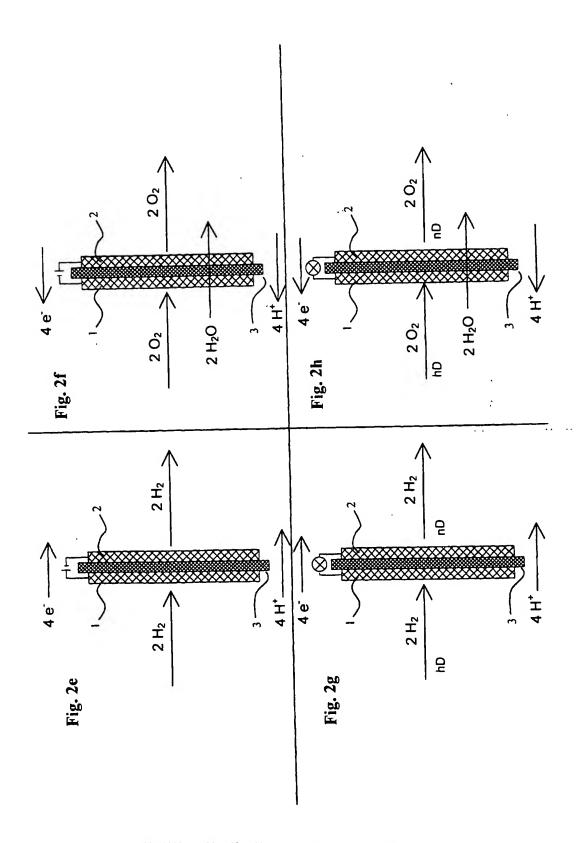












X

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS

IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

FADED TEXT OR DRAWING

BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

SKEWED/SLANTED IMAGES

COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

GRAY SCALE DOCUMENTS

LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

□ OTHER: ____

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.